

Docket No.: 50195-261

SAD
#2
9.25.01

PATENT

10974 U.S. PTO
09/893892
06/29/01

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of

Hideaki ONO, et al.

Serial No.:

09/893892

Group Art Unit:

1742

Filed: June 29, 2001

Examiner:

Sheehan

For: EXCHANGE SPRING MAGNET POWDER AND A METHOD OF PRODUCING THE
SAME

**CLAIM OF PRIORITY AND
TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents
Washington, DC 20231

Sir:

In accordance with the provisions of 35 U.S.C. 119, Applicants hereby claims the priority
of:

Japanese Patent Application No. 2000-195890,
Filed June 29, 2000

cited in the Declaration of the present application. A certified copy is submitted herewith.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY

Stephen A. Becker

Stephen A. Becker
Registration No. 26,527

600 13th Street, N.W.
Washington, DC 20005-3096
(202) 756-8000 SAB:ykg
Date: June 29, 2001
Facsimile: (202) 756-8087

日本国特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

50195-261
June 29/2001
ONO, ET AL.
McDermott, Will & Emery

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application:

2000年 6月29日

出願番号
Application Number:

特願2000-195890

出願人
Applicant(s):

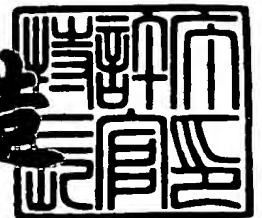
日産自動車株式会社



2001年 3月16日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3018472

【書類名】 特許願

【整理番号】 NM00-00057

【提出日】 平成12年 6月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01F 1/00

【発明の名称】 交換スプリング磁石粉末及びその製造方法

【請求項の数】 12

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会
社内

 【氏名】 小野 秀昭

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会
社内

 【氏名】 脇 憲尚

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会
社内

 【氏名】 島田 宗勝

【特許出願人】

 【識別番号】 000003997

 【氏名又は名称】 日産自動車株式会社

 【代表者】 カルロス ゴーン

【代理人】

 【識別番号】 100102141

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 的場 基憲

 【電話番号】 03-3357-5155

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 061067

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9810101

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 交換スプリング磁石粉末及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 永久磁石材料と軟磁性材料を複合化して成る異方性交換スプリング磁石粉末において、

元素成分として、希土類元素と、遷移金属元素と、ホウ素（B）、炭素（C）、窒素（N）及び酸素（O）から成る群より選ばれた少なくとも 1 種の元素を含み、

上記永久磁石材料及び軟磁性材料の結晶粒径が 1 5 0 n m 以下であることを特徴とする異方性交換スプリング磁石粉末。

【請求項 2】 上記希土類元素の含有量が 2 ～ 1 5 原子%であり、ホウ素（B）、炭素（C）、窒素（N）及び酸素（O）から成る群より選ばれた少なくとも 1 種の元素の含有量が 1 ～ 2 5 原子%以下であることを特徴とする請求項 1 記載の異方性交換スプリング磁石粉末。

【請求項 3】 上記希土類元素が、ネオジウム（N d）、プラセオジウム（P r）及びサマリウム（S m）から成る群より選ばれた少なくとも 1 種の元素であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の異方性交換スプリング磁石粉末。

【請求項 4】 上記遷移金属元素が、鉄（F e）又はコバルト（C o）を主成分とすることを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末。

【請求項 5】 請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末を製造するに当たり、

永久磁石材料と軟磁性材料を含有する結晶質母材及び／又はアモルファス部を有する該結晶質母材を、アモルファス化工程とこれに続く結晶化工程から成る連続工程で 1 回以上処理することを特徴とする異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 6】 上記アモルファス部を有する結晶質母材は、磁化の温度特性から得られるアモルファス部含有量が 9 5 % 以下であることを特徴とする請求項 5 記載の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 7】 上記結晶化工程の際、上記アモルファス化工程でアモルファス化された結晶質母材に異方性を付与して固化成形することを特徴とする請求項 5 又は 6 記載の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 8】 上記アモルファス化工程を、真空中、不活性ガス中、窒素中及び有機溶媒中のいずれかで酸素を遮断した状態で行うことを特徴とする請求項 5～7 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 9】 上記結晶化工程を、真空中、不活性ガス中、窒素中及び有機溶媒中のいずれかで酸素を遮断した状態で行うことを特徴とする請求項 5～8 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 10】 上記結晶化工程の結晶化加熱処理温度が 9 5 0℃以下であることを特徴とする請求項 5～9 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 11】 上記結晶化工程の結晶化加熱処理時間が 1 時間以内であることを特徴とする請求項 5～10 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法。

【請求項 12】 請求項 1～4 のいずれか 1 つの項に記載の異方性交換スプリング磁石粉末を、異方性付与成形工程及び固化工程で処理して得られることを特徴とする異方性交換スプリング磁石。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、異方性交換スプリング磁石粉末及びその製造方法に係り、更に詳細には、モータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ及びトルクセンサ等に好適に用いることのできる異方性交換スプリング磁石粉末、その製造方法及びこれを用いた異方性交換スプリング磁石に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来の永久磁石材料としては、化学的に安定で低コストなフェライト磁石や高性能な希土類系磁石が実用化されている。これらの磁石は磁石化合物としてほぼ

単一の化合物で構成されているが、近年、高保磁力の永久磁石材料と高磁束密度の軟磁性材料を複合化した交換スプリング磁石が注目されている。

かかる交換スプリング磁石には高い最大エネルギー積が期待されており、理論的には 7900 MA/m (100 MGOe) 以上の極めて高い磁石特性が実現可能である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、現在開発されている交換スプリング磁石は等方性磁石であり、得られる最大エネルギー積も 1580 MA/m (20 MGOe) 程度の低い値にとどまっている。これは、交換スプリング磁石を構成する結晶粒の方向性が一定方向に揃っていないために特性向上がなされていないことが最大の原因であり、交換結合を示すような微細で且つ結晶方向が揃った異方性交換スプリング磁石を実現するために多くの研究がなされている。

【0004】

本発明は、このような従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、有意な異方性を有し、良好な最大エネルギー積を有する交換スプリング磁石を実現できる、異方性交換スプリング磁石粉末及びその製造方法、並びにこの磁石粉末を用いてなる異方性交換スプリング磁石を提供することを目的としている。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意検討を重ねた結果、所定の結晶質母材を特定のアモルファス化工程及び結晶化工程で処理することなどにより、上記目的が達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0006】

即ち、本発明の異方性交換スプリング磁石粉末は、永久磁石材料と軟磁性材料を複合化して成る異方性交換スプリング磁石粉末において、

元素成分として、希土類元素と、遷移金属元素と、ホウ素 (B)、炭素 (C)、窒素 (N) 及び酸素 (O) から成る群より選ばれた少なくとも1種の元素を含み、

上記永久磁石材料及び軟磁性材料の結晶粒径が150nm以下であることを特徴とする。

【0007】

また、本発明の異方性交換スプリング磁石材料粉末の好適形態は、上記希土類元素の含有量が2～15原子%であり、ホウ素（B）、炭素（C）、窒素（N）及び酸素（O）から成る群より選ばれた少なくとも1種の元素の含有量が1～25原子%以下であることを特徴とする。

【0008】

また、本発明の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法は、上述の如き異方性交換スプリング磁石粉末を製造するに当たり、

永久磁石材料と軟磁性材料を含有する結晶質母材及び／又はアモルファス部を有する該結晶質母材を、アモルファス化工程とこれに続く結晶化工程から成る連続工程で1回以上処理することを特徴とする。

【0009】

更に、本発明の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法の好適形態は、上記アモルファス部を有する結晶質母材は、磁化の温度特性から得られるアモルファス部含有量が95%以下であることを特徴とする。

【0010】

更にまた、本発明の異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法の他の好適形態は、上記結晶化工程の際、上記アモルファス化工程でアモルファス化された結晶質母材に異方性を付与して固化成形することを特徴とする。

【0011】

また、本発明の異方性交換スプリング磁石は、上述の如き異方性交換スプリング磁石粉末を、異方性付与成形工程及び固化工程で処理して得られることを特徴とする。

【0012】

【作用】

本発明によれば、結晶粒径が微細で且つ結晶方向が揃った異方性交換スプリング磁石粉末及び異方性交換スプリング磁石が得られる。

なお、本発明の製造方法を行う際、アモルファス化工程と結晶化工程の連続工程を繰り返し実施すれば、より微細で磁石特性に優れた異方性交換スプリング磁石粉末を得ることが可能である。

【0013】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の交換スプリング磁石粉末について詳細に説明する。なお、本明細書において、「%」は特記しない限り質量百分率を表すものとする。

上述の如く、本発明の交換性スプリング磁石粉末は、永久磁石材料と軟磁性材料を複合化して成る異方性に優れた交換スプリング磁石粉末である。

元素成分としては、希土類元素と、遷移金属元素と、ホウ素（B）、炭素（C）、窒素（N）又は酸素（O）及びこれらの任意の混合元素を含み、永久磁石材料及び軟磁性材料の結晶粒径が150nm以下である。

【0014】

ここで、永久磁石材料としては、Nd-Fe-B系、Sm-Fe-N系、Sm-Fe-N-B系、Sm-Co系、Sm-Co-B系、Ba₆（バリウム）-Fe₂O₃系及びSr（ストロンチウム）₆-Fe₂O₃系などの材料を挙げることができ、軟磁性材料としては、Fe、Co、Fe-B系、Fe-C系、Fe-Co系、Fe-N系材料や、Mn（マンガン）-Zn（亜鉛）系フェライト、Ni（ニッケル）-Zn系フェライト及びFe₃O₄系フェライトなどを挙げることができる。

【0015】

本発明の交換性スプリング磁石粉末では、上述の如き永久磁石材料と軟磁性材料が複合化されており、これを換言すると、この磁石粉末では、隣接する永久磁石材料相の磁化と軟磁性材料相の磁化が交換結合している状態で両者が混在していることになる。

そして、本発明の交換スプリング磁石粉末は、大きな異方性を示し、代表的には、次式

$$B_r // B_r \perp = 10 \sim 30$$

（式中の $B_r //$ は磁場中成形時の磁場印加方向の残留磁束密度、 $B_r \perp$ はこの

磁場印加方向に垂直方向の残留磁束密度を示す)で表される異方性強度を有する。

【0016】

一方、上述の如く、本発明の交換性スプリング磁石粉末は、元素成分の観点からは、希土類元素と、遷移金属元素と、B、C、N又O及びこれらの任意の組合せに係る元素を含有し、希土類元素と、遷移金属元素と、BやC等の元素を必須成分とする。

この場合、希土類元素としては、特に限定されるものではないが、Nd、Pr又はSm及びこれらの任意の組合せに係る元素が好適であり、遷移金属元素としても特に限定されるものではないが、Fe及び/又はCoを主成分として用いることが好ましい。なお、遷移金属元素としては、その他にバナジウム(V)、ニオブ(Nb)、クロム(Cr)、ニッケル(Ni)、アルミニウム(Al)、チタン(Ti)、ガリウム(Ga)及びジルコニウム(Zr)等の元素を用いることも可能である。

【0017】

また、本発明の交換スプリング磁石粉末において、上記希土類元素やB、C等の元素の含有量は、上述した特性を発揮する限り特に限定されるものではないが、代表的には、希土類元素含有量が2～15原子%、B、C等の元素含有量が1～25原子%以下であることが好ましい。

希土類元素含有量が2原子%未満では、その後に製造される磁石中の永久磁石材料の含有量が低下し、15原子%を超えると、軟磁性材料の含有量が低下して、いずれの場合でも磁石性能が低下してしまうことがある。

一方、B、C等の元素含有量が上述の範囲を逸脱すると、本発明の狙いとする磁石材料にとって好ましくない化合物が生成したり、磁石材料中の化合物組成比が好ましい範囲を外れるなどの不都合が生じて磁石材料の性能が低下してしまうことがある。なお、遷移金属元素については、70～85原子%とすることが好ましい。

【0018】

更に、本発明の交換スプリング磁石粉末においては、上述した永久磁石材料及

び軟磁性材料の結晶粒径が150nm以下に制御されており、これにより、この磁石粉末は良好な交換結合性を示す。

粒径が150nmを超えると、良好な磁気特性が得られないことがあり、本発明の意図する磁石材料が得られない。

【0019】

次に、本発明の交換スプリング磁石粉末の製造方法について詳細に説明する。

本発明の交換スプリング磁石粉末の製造方法は、上述のような交換スプリング粉末を得る方法であり、上記永久磁石材料と軟磁性材料を含有する結晶質母材若しくはかかる結晶質母材の一部にアモルファス部を形成した材料、又は両者の混合物につき、アモルファス化処理と結晶化処理を少なくとも1回ずつ連続的に施すことにより行われる。

【0020】

ここで、上記結晶質母材は、上述したような永久磁石材料と軟磁性材料を含有する結晶質の磁性材料であり、その元素成分も上述の通りであり、本発明の交換スプリング磁石粉末との大きな差異は、隣接する永久磁石相と軟磁性相の磁化が交換しているか否かである。

本発明の製造方法において、かかる結晶質母材へのアモルファス部の導入は、公知の技術、例えば高周波溶解法や液体急冷法やアトマイズ法などによって行うことができる。

【0021】

このように、結晶質母材の一部に予めアモルファス部を導入することの利点は、その後のアモルファス化工程を簡素化・短時間化できるため、母材の酸化を十分に抑制できることにあり、これにより、得られる交換スプリング磁石粉末の磁石特性を更に向上できる。

このとき、母材中のアモルファス部の含有量は、磁化の温度特性から評価できるが、95%以下の範囲とすることが望ましい。これを超えてアモルファス部を多くすると、母材結晶の配向度が低下して磁石特性が低下してしまうことがある。

【0022】

また、上記アモルファス化工程は、ボールミル法やプラズマ照射法等を適用することによって行うことができ、この工程により、結晶質母材及び／又はこれにアモルファス部を導入した材料を、アモルファスマトリックスの中に微細な結晶粒が残留している状態へとアモルファス化させる。

そして、本製造方法では、このアモルファス化工程に引き続き熱処理による結晶化工程を実施するが、この工程により、上記アモルファスマトリックス中の結晶粒が交換結合を行うような微細な結晶粒に結晶化され、この際、在留していた微細結晶粒の方向に連続的に結晶が成長するために、一つの結晶粒内では微細で且つ結晶粒径が揃った異方性交換スプリング磁石粉末が形成されることになる。

【0023】

なお、本製造方法において、上記アモルファス化工程及び／又は結晶化工程は、酸素を遮断した状態、例えば真空中、不活性ガス中、窒素中又は有機溶媒中を行うことが望ましい。かかる条件下で行うことにより、希土類系磁石化合物の劣化を防止することができ、得られる交換スプリング磁石粉末の磁石特性の低下を防止することが可能となる。

また、本製造方法では、上記アモルファス化工程と結晶化工程（アモルファス化－結晶化の連続工程）を1回以上繰り返すことが望ましく、これにより、結晶配向度がいっそう向上して異方性付与効果が大きくなり、磁石特性の向上に有効となる。

【0024】

なお、上記結晶化工程では、上述のような交換結合を実現できる結晶化が行えれば十分であるが、代表的には、結晶化加熱処理温度を950℃以下とすることが好ましい。950℃を超えると、微細な結晶粒の異方性交換スプリング磁石粉末が得られないことがあり、磁気特性の劣化が発生するため、950℃以下で行うことが望ましく、同様の理由で、結晶化加熱処理時間は1時間以内にすることが望ましい。

【0025】

また、本製造方法では、この結晶化工程を圧縮下に行うことも可能であり、これにより、結晶成長を促進することができる。

圧縮方法としては、例えばホットプレスや放電プラズマ焼結方法が適用でき、ホットプレスの場合は $49 \sim 98 \text{ MPa}$ ($0.5 \sim 1.0 \text{ ton/cm}^2$)、放電プラズマ焼結方法の場合は $490 \sim 980 \text{ MPa}$ ($5 \sim 10 \text{ ton/cm}^2$)程度の圧力で圧縮することが望ましい。

【0026】

更に、かかる熱処理による結晶化工程では、前工程でアモルファス化された磁性材料に異方性を付与した後に固化成形し、これを結晶化させてもよく、これにより、結晶配向度を更に向上して磁石特性を更に改善することができる。

かかる異方性を付与する方法としては、例えば磁場中において結晶方向を揃えた状態で圧縮成形を行うといった方法がある。また、このときの処理条件としては、磁場強度 1580 MA/m (20 kOe)以上、圧縮圧力 $98 \sim 294 \text{ MPa}$ ($1 \sim 3 \text{ ton/cm}^2$)で、常温とすることが望ましい。

【0027】

次に、本発明の異方性交換スプリング磁石について詳細に説明する。

本発明の異方性交換スプリング磁石は、上述した本発明の異方性交換スプリング磁石粉末を用いて得られるものであり、かかる磁石粉末を異方性付与成形工程及び固化工程で処理することによって得られる。

なお、この際の固化工程としては、結晶粒の粗大化を防止するため、低温でのフルデンス化が可能であるホットプレス法やプラズマ焼結法などが有効である。

【0028】

また、本発明の異方性交換スプリングは、代表的にはバルク型異方性交換スプリング磁石として得られるが、同じ形態の既存の樹脂や低融点金属ボンド磁石又はフルデンス磁石に比べて大きな最大エネルギー積を示すので、モータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ及びトルクセンサ等に応用すると、製品の小型軽量化を促進し、例えば自動車用部品に適用した場合には、燃費の飛躍的向上が可能となる。

更に、かかるバルク磁石は極めて大きな最大エネルギー積を有するため、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ及びトルクセンサの中でも、特に電気自動車

やハイブリッド電気自動車の駆動用モータに適用することで、これまではスペースの確保が困難であった場所に駆動用モータを搭載することを可能とし、環境問題を一気に解決できるものである。

【 0 0 2 9 】

【実施例】

以下、本発明を実施例及び比較例により更に詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

【 0 0 3 0 】

(実施例 1)

高周波誘導溶解させた $Nd_4Fe_{88-x}Co_5Nb_3B_x$ 組成合金を用い、液体急冷法によりアモルファス部を含む結晶質の母材料を作製した。次いで、この結晶質母材を 1 mm 以下に粉碎した粗粉末に、プラズマ照射法によるアモルファス化処理を施し、その後、結晶化処理を所定のサイクル実施して本例の異方性交換スプリング磁石粉末を作製した。この磁石粉末において、永久磁石材料である $Nd_2Fe_{14}B$ の結晶粒径は約 40 nm、軟磁性材料である Fe_3B の結晶粒径は約 40 nm であった。

なお、ここでのプラズマ照射法は、上記粗粉末を高周波アルゴン (Ar) プラズマ中に曝すことによって行い、この粗粉末をその表面方向からプラズマエネルギーでアモルファス化させるものである。

得られた交換スプリング磁石粉末を 100 μm 以下に粉末化した後、1975 kA/m (25 kOe) の磁場中でプレス成形して圧粉体を作製し、最大 1975 kA/m (25 kOe) の直流 BH トレーサにて、磁場印加方向とこれに垂直方向での磁化曲線を測定して、これらの曲線の相違から異方性の有無を確認した。

【 0 0 3 1 】

図 1 は、上記合金で $x = 19$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス含有量が 80 % である母材について、結晶化工程を 650 $^{\circ}C \times 10 min$ の真空中熱処理とし、アモルファス化と結晶化のサイクル回数と、異方性の強度 (磁場中成形時の磁場印加方向の残留磁束密度 B_r // とこれに垂直方向の残

留磁束密度 B_r 比) の相対値を示したものである。

図 1 より、本発明のプロセスの効果は極めて大きく、1 回のアモルファス化と結晶化により異方性が付与できることが分かる。また、1 回以上の繰り返しにより異方性の大きさが増大する傾向も示されている。

【0032】

図 2 は、図 1 と同様の材料の保磁力の相対値を示したものである。磁石特性として重要な保磁力は、母材状態では得られず、アモルファス化と結晶化を 1 回以上行うことによって向上することが明らかである。

また、このようなプロセスの繰り返し回数による異方性の増大は、表 1 に示したような各種の永久磁石材料と何磁性材料を組み合わせた交換スプリング磁石粉末においても同様であり、図 2 にデータを併記した。

【0033】

【表 1】

No.	異方性の有無	主な永久磁石材料	主な軟磁性材料
1	有り	Nd-Fe-B 系	Fe, Fe-B, Fe-C, Fe-Co
2	有り	Sm-Fe-N 系	Fe, Fe-N, Fe-Co
3	有り	Sm-Fe-N-B 系	Fe, Fe-N, Fe-B, Fe-Co
4	有り	Nd-Fe-B 系 TbCu7 type	Fe, Fe-B, Fe-Co
5	有り	Sm-Fe-N 系 TbCu7 type	Fe, Fe-N, Fe-Co
6	有り	Sm-Co 系	Fe, Fe-Co, Co
7	有り	Sm-Co-B 系	Fe, Fe-B, Fe-Co, Co
8	有り	Ba ₆ Fe ₂ O ₃ 系, Sr ₆ Fe ₂ O ₃ 系	Mn-Zn 系フェライト, Ni-Zn 系フェライト, Fe ₃ O ₄ 系フェライト

【0034】

図 3 は、 $x = 20$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス含有量が 90% である母材について、結晶化工程として、 1975 kA/m (25 kOe) の磁場中で異方性付与して圧縮成形した後に真空中、ホットプレス圧縮

圧力59MPa (0.6 ton/cm^2)、 $650^\circ\text{C} \times 10 \text{ min.}$ のホットプレスを行った場合のアモルファス化、結晶化のサイクル回数と異方性の強度 ($B_r // B_r \perp$ 比) の相対値を示したものである。

本プロセスの効果は極めて大きく1回の実施により異方性が付与できることがわかる。また、1回以上の繰り返しにより異方性の大きさが増大する傾向も示されている。

【0035】

図4は、図3と同様の材料の保磁力の相対値を示したものである。磁石特性として重要な保磁力は、母材状態では得られず、アモルファス化と結晶化を1回以上行うことによって向上することが明らかである。

【0036】

図5は、 $x = 0.5 \sim 30$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス含有量が75%である母材に関して、結晶化工程を $650^\circ\text{C} \times 10 \text{ min.}$ の真空中熱処理とし、アモルファス化と結晶化のサイクル回数を3として x と異方性強度の関係を評価した圧粉体の最大エネルギー積を示したものである。

このときの圧粉体の最大エネルギー積は、圧粉体作製時の磁場印加方向の磁化曲線から求めたものであり、粉末の磁気特性として示している。

組成範囲としては、Bが1~25原子%において、現状の磁石材料を上回る高特性が得られることがわかる。

【0037】

図6は、 $x = 19$ の組成を有する母材について、結晶化工程を $650^\circ\text{C} \times 1 \text{ min.}$ の真空中熱処理、結晶化のサイクル回数を3として、アモルファス部含有量と異方性強度を評価した圧粉体の最大エネルギー積の相対値を示したものである。アモルファス部含有量は母材の磁化-温度特性から評価した。

アモルファス部含有量が90%以上で急激に磁石特性が低下するのは、異方性が低下することが原因である。また、アモルファス部を含有させることにより酸素濃度の定量評価から素材の酸化が低減できていることが判明した。

【0038】

(実施例2)

高周波誘導溶解した $\text{Nd}_x\text{Fe}_{84-x}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$ 組成合金を用いて、液体急冷法でアモルファス部を含む結晶質の母材を作製し、この母材をステンレス製ボールとともにシクロヘキサンを溶媒としてステンレス製ボールミルポット内に投入し、ボールミル法によりアモルファス化処理を行った。

その後、結晶化工程を所定のサイクル実施して、本例の異方性交換スプリング磁石粉末を作製した。なお、この磁石粉末において、永久磁石材料である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の結晶粒径は約 50 nm 、軟磁性材料である Fe の結晶粒径は約 50 nm であった。

得られた粉末を $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下に粉末化した後、 1975 kA/m (25 kOe) の磁場中でプレス成形して圧粉体を作製し、最大 1975 kA/m (25 kOe) の直流 BH トレーサにて、磁場印加方向とこれに垂直方向での磁化曲線を測定し、これらの曲線の差異により異方性の有無を確認した。

【0039】

図7は、上記合金において $x=9$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス含有量が 50% である母材について、結晶化工程を $600^\circ\text{C} \times 10\text{ min.}$ の真空中熱処理として、アモルファス化と結晶化のサイクル回数と異方性の強度 ($\text{Br}_{//}/\text{Br}_{\perp}$ 比) の相対値を示したものである。

本プロセスの効果は極めて大きく、1回の実施により異方性が付与できることが分る。また、1回以上の繰り返しのより異方性の大きさが増大する傾向も示されている。

【0040】

図8は、図7と同様の材料の保磁力の相対値を示したものである。

磁石特性として重要な保磁力は母材状態では得られず、アモルファス化と結晶化を1回以上行うことによって向上することが明らかである。

【0041】

図9は、 $x=8$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス含有量が 60% である母材について、結晶化工程として、 1975 kA/m (25 kOe) の磁場中で異方性付与して圧縮成形した後に真空中、圧縮圧力 980 MPa (10 ton/cm^2)、 $600^\circ\text{C} \times 10\text{ min.}$ の放電プラズマ焼結を行っ

た場合のアモルファス化と結晶化のサイクル回数と異方性の強度 ($B_r // B_r \perp$ 比) の相対値を示したものである。

本プロセスの効果は極めて大きく、1回の実施しにより異方性が付与できることが分る。また、1回以上の繰り返しにより異方性の大きさが増大する傾向が示されている。

【0042】

図10は、図9と同様の材料の保磁力の相対値を示したものである。

磁石特性として重要な保磁力は母材状態では得られず、アモルファス化と結晶化を1回以上行うことによって向上することが明らかである。

【0043】

図11は、 $x = 0.5 \sim 2.0$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス部含有量が45%である母材につき、アモルファス化と結晶化のサイクル回数を2として、 x と異方性強度の関係を評価した圧粉体の最大エネルギー積を示したものである。このときの圧粉体の最大エネルギー積は、圧粉体作製時の磁場印加方向の磁化曲線から求めたものであり、粉末の磁気特性として示している。

組成範囲としては、2～15原子%において、現状の磁石材料を上回る高特性が得られることがわかる。また、希土類元素のNdに対して、Nd-Pr、Pr、Nd-Dy（ジスプロシウム）などを希土類元素として用いた場合においても同様の効果と高性能化が実現でき、これらのデータを合わせて図示した。

【0044】

図12は、 $x = 7$ の組成を有し、磁化の温度特性から評価したアモルファス含有量が50%である母材について、結晶化工程として「650℃×5min. の真空中熱処理」又は「1975kA/m (25kOe) の磁場中で圧縮成形した後に真空中、784MPa (8ton/cm²)、650℃×5min. の放電プラズマ焼結」を行い、アモルファス化と結晶化のサイクル回数と異方性の強度 ($B_r // B_r \perp$ 比) の相対値を示したものである。

結晶化工程を真空中熱処理とした場合に比べて、磁場中成形後の焼結とした場合の方が更に異方性度合いが増すことがわかる。

【 0 0 4 5 】

(実施例 3)

図 1 3 は、実施例 2 で得られた異方性交換スプリング磁石粉末を用いて、バルクの異方性交換スプリング磁石を作成し、これを電気自動車又はハイブリッド電気自動車の駆動用モータに応用した例を示している。

従来の磁石を用いたモータに比べて最大トルクが 1. 6 7 倍に増加した。

【 0 0 4 6 】

【発明の効果】

以上説明してきたように、本発明によれば、所定の結晶質母材を特定のアモルファス化工程及び結晶化工程で処理することなどとしたため、有意な異方性を有し、良好な最大エネルギー積を有する交換スプリング磁石を実現できる、異方性交換スプリング磁石粉末及びその製造方法、並びにこの磁石粉末を用いてなる異方性交換スプリング磁石が提供される。

即ち、本発明の製造方法は優れた磁石性能を有する異方性交換スプリング磁石を提供する製造方法であり、これにより得られた異方性交換スプリング磁石粉末は、従来の等方性磁石粉末では得られなかった高性能なボンド磁石やフルデンス磁石を実現できるため、磁石を用いたモータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ、トルクセンサなどに本発明の異方性交換スプリング磁石を応用すると、製品の小型軽量化を促進し、自動車用部品に適用した場合には、飛躍的な燃費の向上が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

実施例 1 における工程サイクル数と異方性強度相対値の関係を示すグラフである。

【図 2】

実施例 1 における表 1 中の材料の工程サイクル数と保磁力相対値の関係を示すグラフである。

【図 3】

実施例 1 における工程サイクル数と異方性強度相対値の関係を示すグラフであ

る。

【図 4】

実施例 1 における工程サイクル数と保磁力相対値の関係を示すグラフである。

【図 5】

実施例 1 における含有量 x と最大エネルギー積の関係を示すグラフである。

【図 6】

実施例 1 におけるアモルファス含有量と最大エネルギー積相対値の関係を示すグラフである。

【図 7】

実施例 2 における工程サイクル数と異方性強度相対値の関係を示すグラフである。

【図 8】

実施例 2 における工程サイクル数と保磁力相対値の関係を示すグラフである。

【図 9】

実施例 2 における工程サイクル数と異方性強度相対値の関係を示すグラフである。

【図 1 0】

実施例 2 における工程サイクル数と保磁力相対値の関係を示すグラフである。

【図 1 1】

実施例 2 における含有量 x と最大エネルギー積の関係を示すグラフである。

【図 1 2】

実施例 2 における結晶化処理が異なる場合の工程サイクル数と異方性強度相対値の関係を示すグラフである。

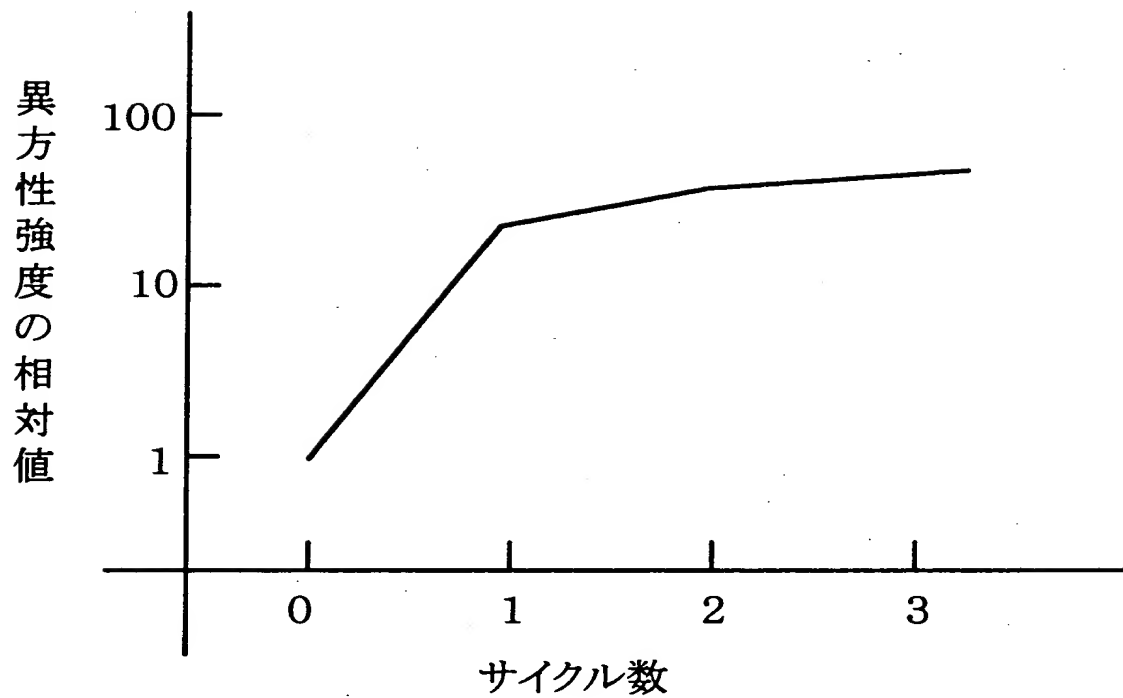
【図 1 3】

実施例 3 における駆動モータの構造を示した概略図である。

【書類名】

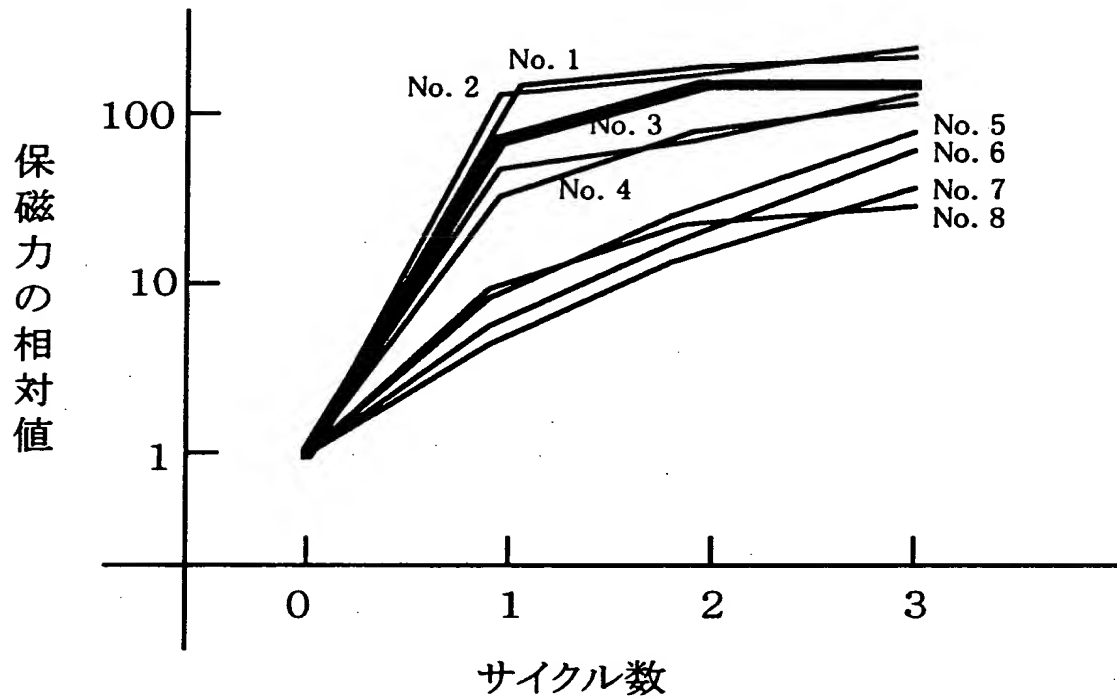
図面

【図 1】



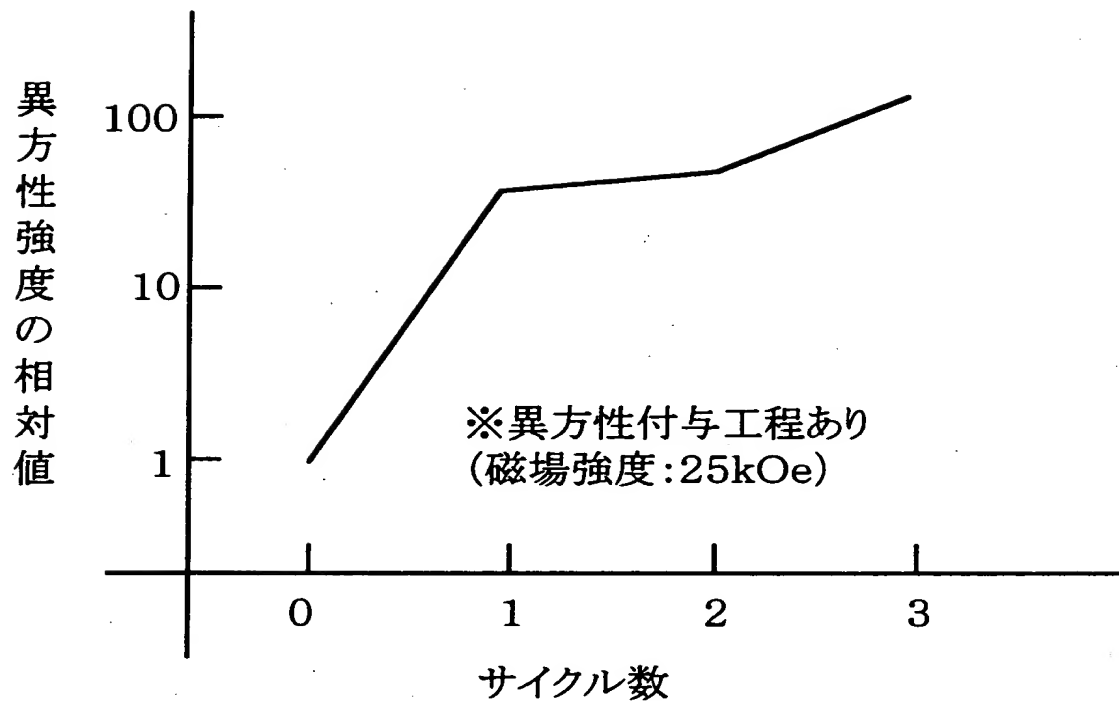
サイクル数と異方性強度相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_4\text{Fe}_{69}\text{Co}_5\text{Nb}_3\text{B}_{19}$)

【図2】



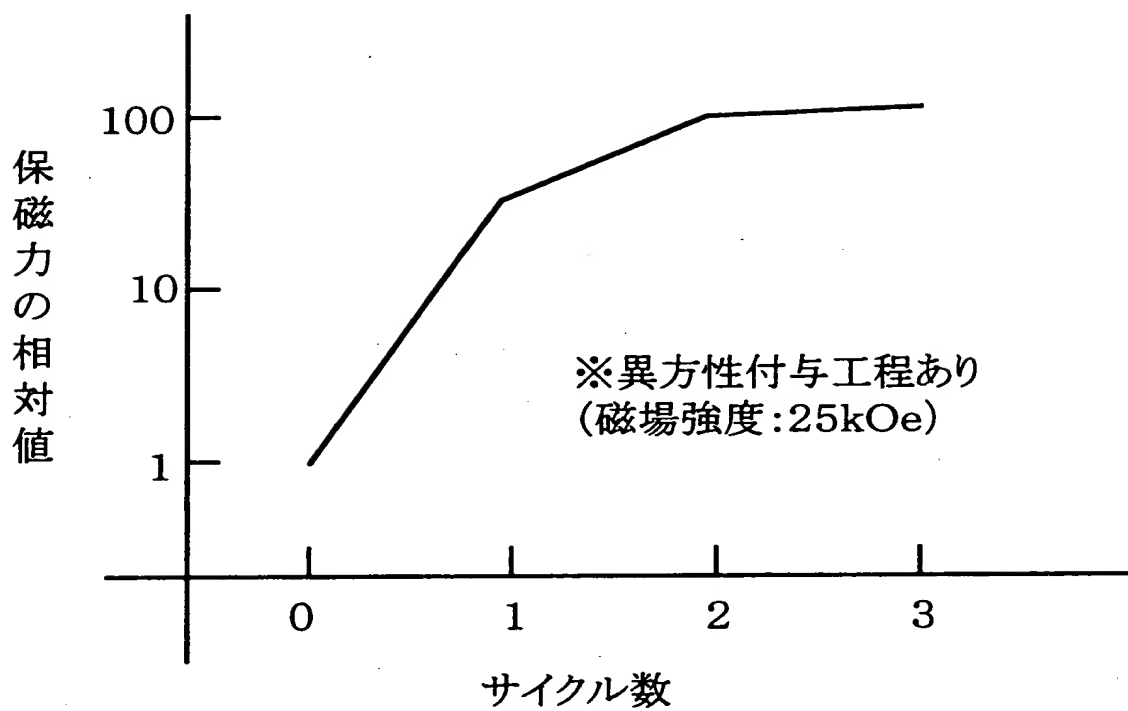
サイクル数と保磁力相対値の関係
(表1中の各種異方性交換スプリング磁石)

【図 3】



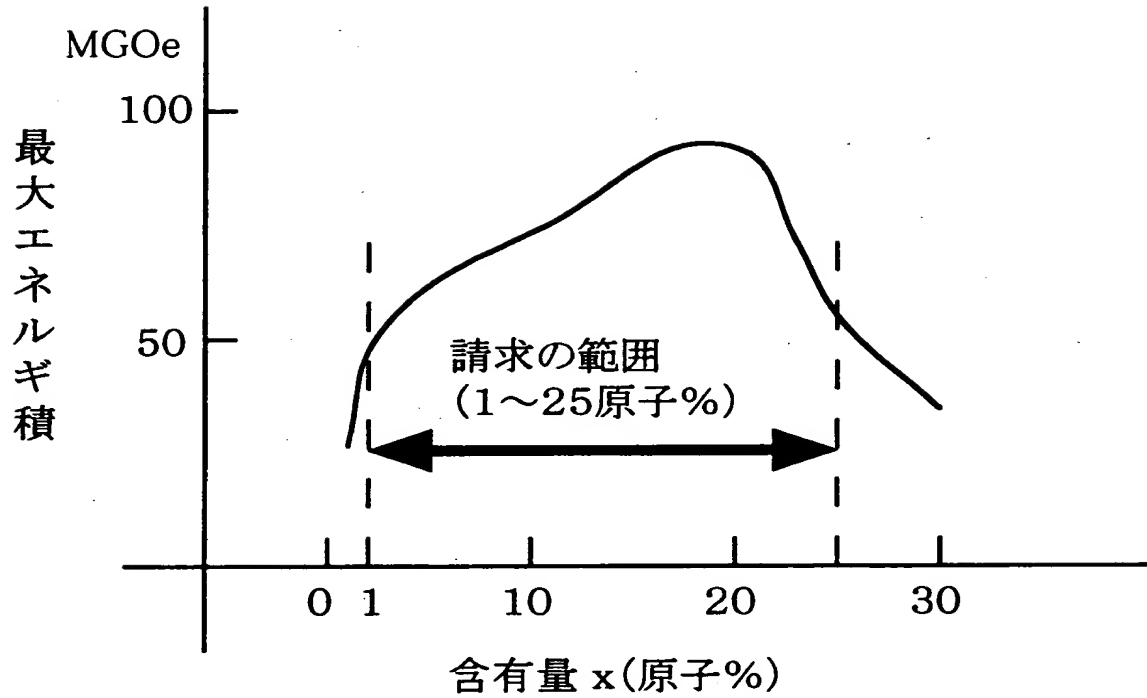
サイクル数と異方性強度相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_4\text{Fe}_{68}\text{Co}_5\text{Nb}_3\text{B}_{20}$)

【図 4】



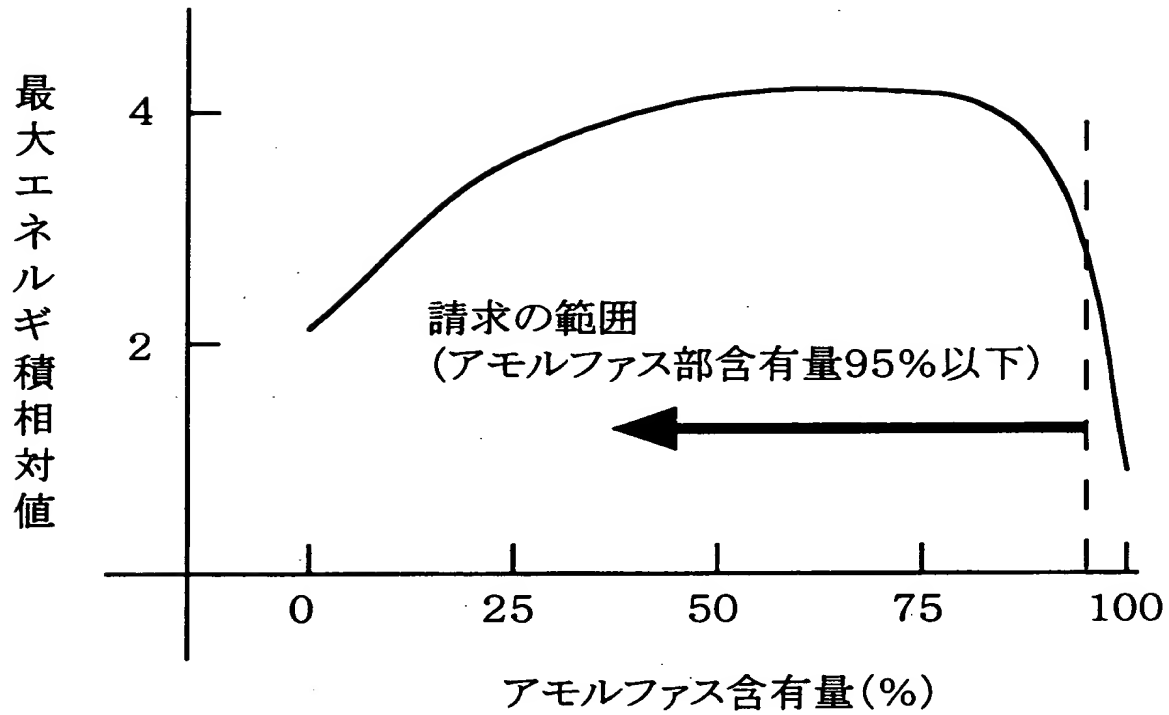
サイクル数と保磁力相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_4\text{Fe}_{68}\text{Co}_5\text{Nb}_3\text{B}_{20}$)

【図 5】



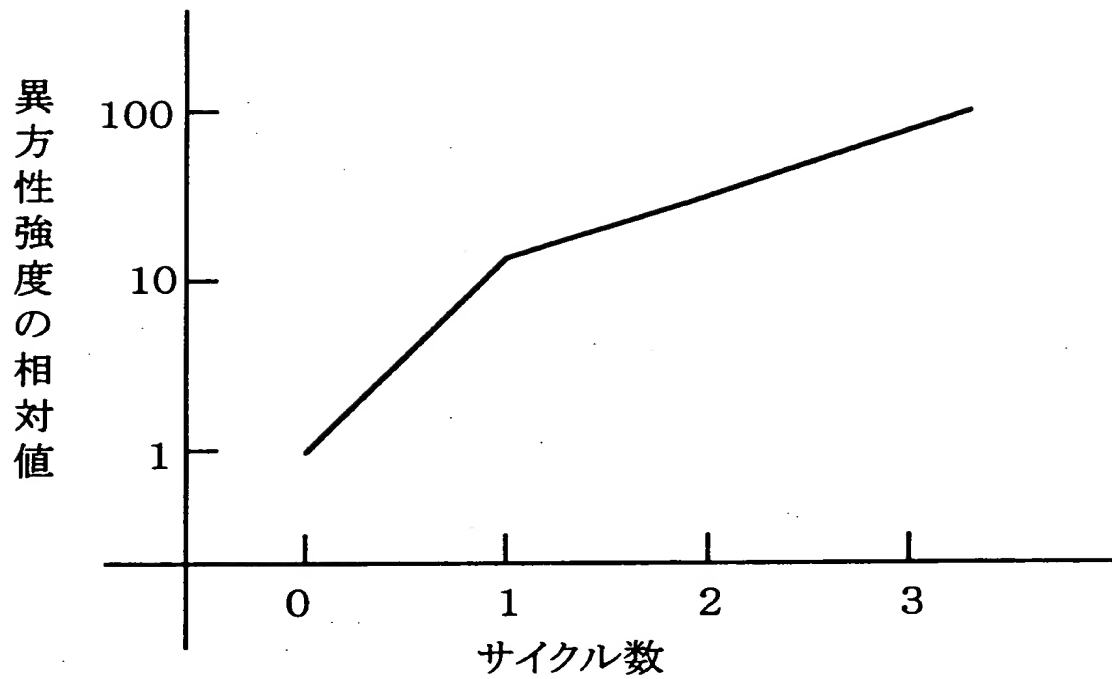
含有量 x と最大エネルギー積の関係
 (磁石材料組成: $\text{Nd}_4\text{Fe}_{88-x}\text{Co}_5\text{Nb}_3\text{B}_x$)

【図 6】



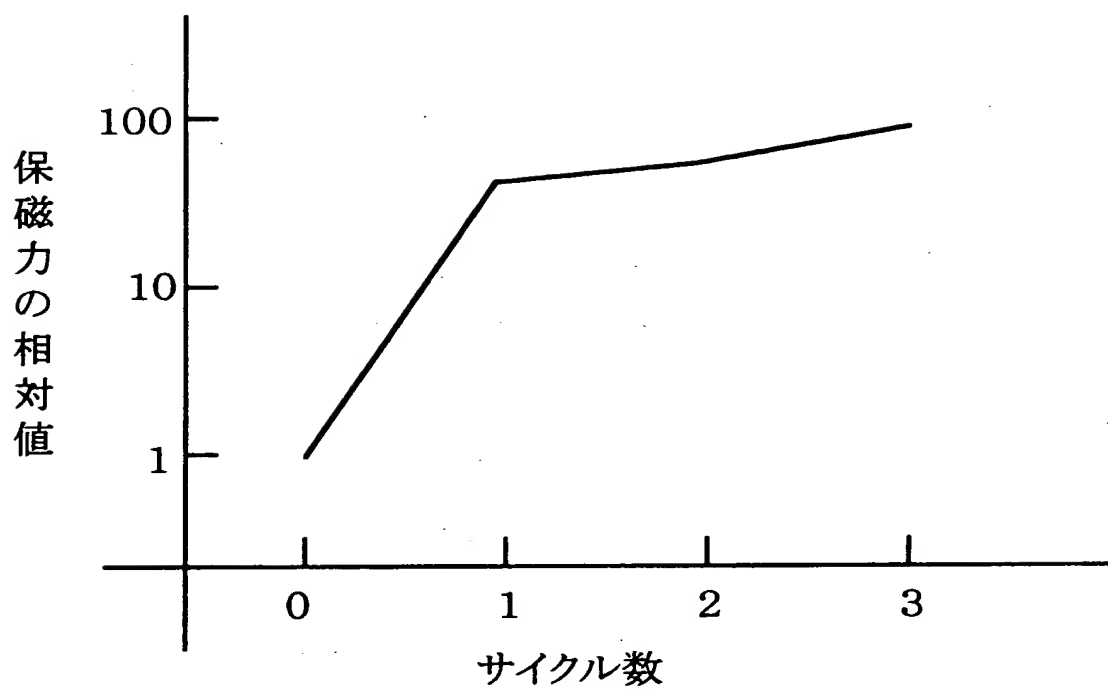
アモルファス含有量と最大エネルギー積相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_4\text{Fe}_{69}\text{Co}_5\text{Nb}_3\text{B}_{19}$)

【図 7】



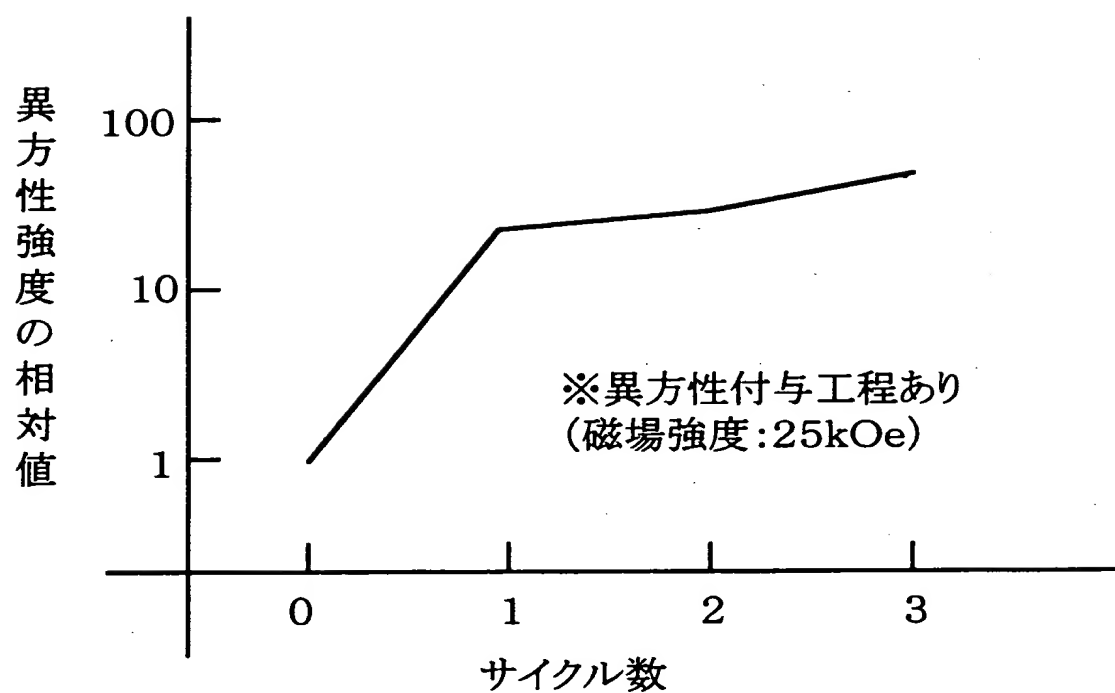
サイクル数と異方性強度相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_9\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$)

【図 8】



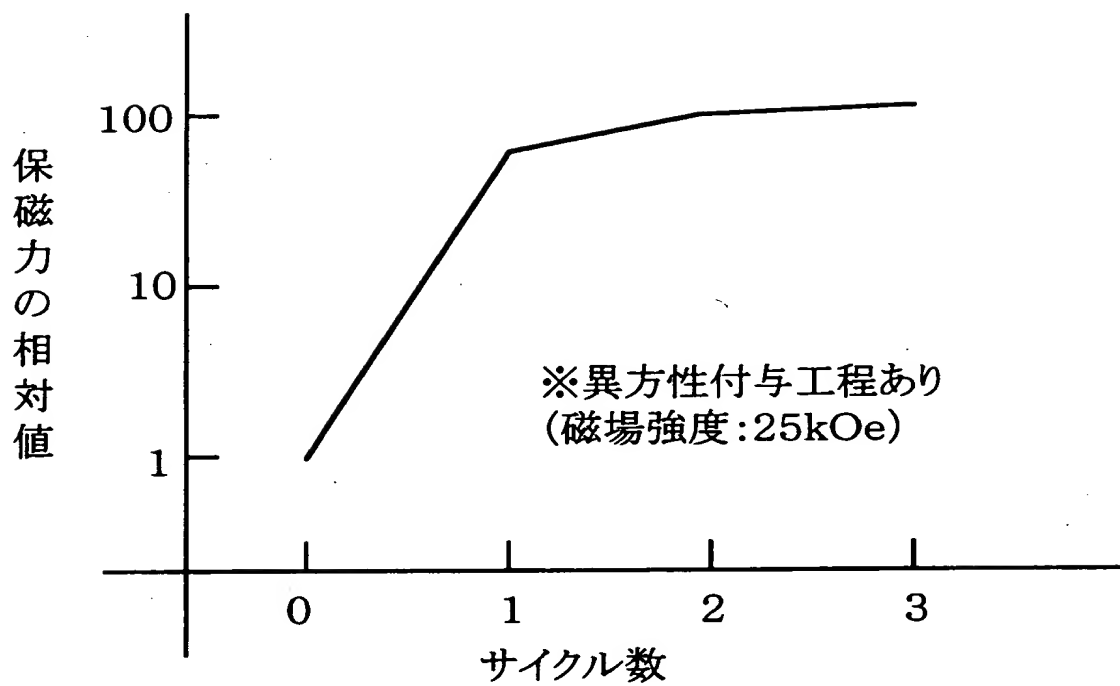
サイクル数と保磁力相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_9\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$)

【図9】



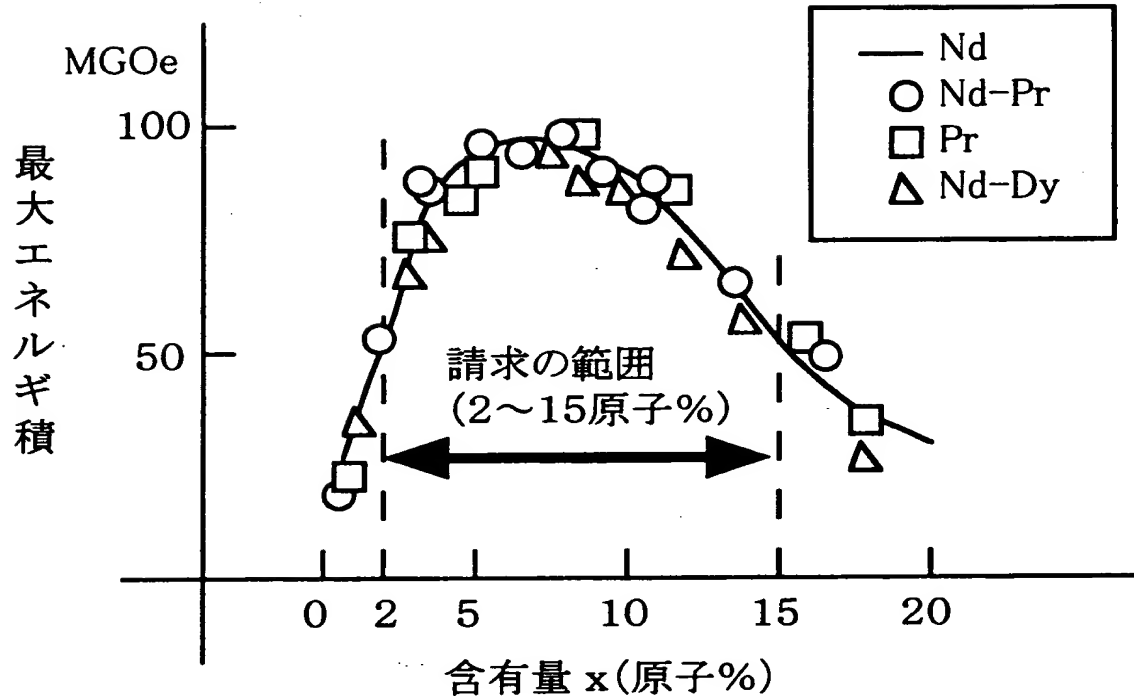
サイクル数と異方性強度相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_8\text{Fe}_{76}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$)

【図 10】



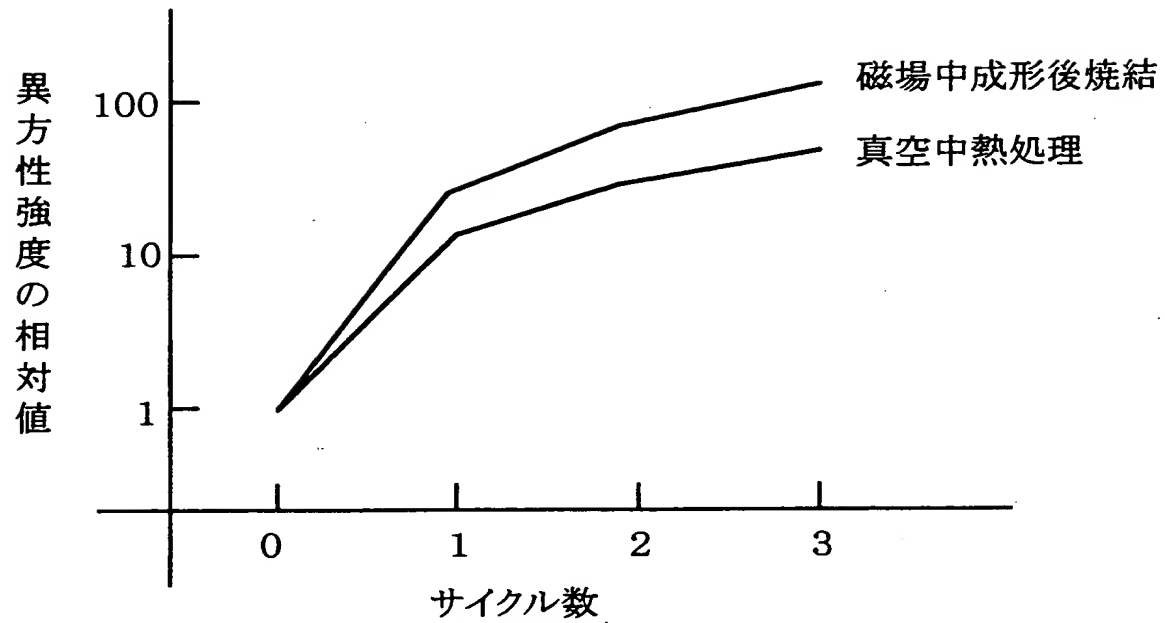
サイクル数と保磁力相対値の関係
(磁石材料組成: $\text{Nd}_8\text{Fe}_{76}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$)

【図 11】



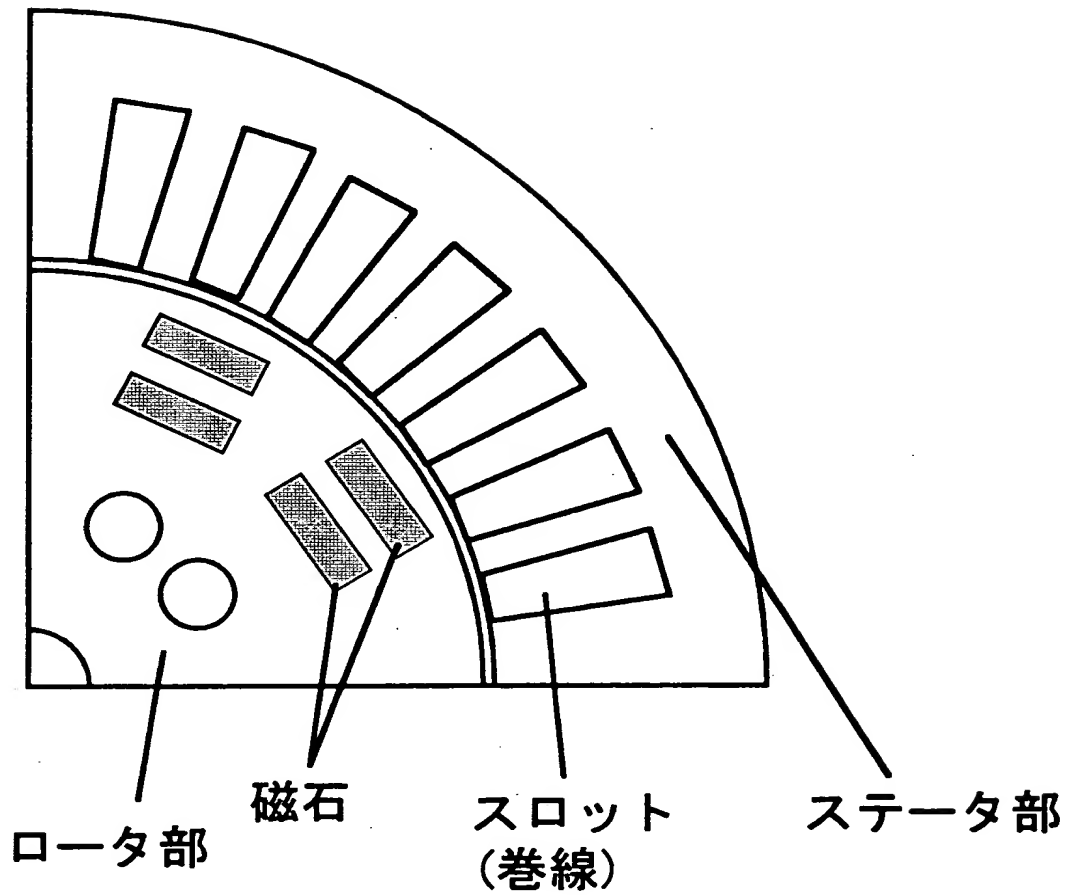
含有量 x と最大エネルギー積の関係
 (磁石材料組成: $\text{Nd}_x\text{Fe}_{84-x}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$)

【図 12】



結晶化処理が異なる場合のサイクル数と
異方性強度相対値の比較
(磁石材料組成: $\text{Nd}_7\text{Fe}_{77}\text{Co}_8\text{V}_2\text{B}_6$)

【図13】



駆動モータの構造

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 有意な異方性を有し、良好な最大エネルギー積を有する交換スプリング磁石を実現できる、異方性交換スプリング磁石粉末、その製造方法及び異方性交換スプリング磁石を提供すること。

【解決手段】 永久磁石材料と軟磁性材料を複合化して成る異方性交換スプリング磁石粉末である。元素成分として、希土類元素、遷移金属元素、ホウ素及び炭素等を含み、永久磁石材料と軟磁性材料の結晶粒径が150nm以下である。

異方性交換スプリング磁石粉末の製造方法は、永久磁石材料と軟磁性材料を含有する結晶質母材やアモルファス部を有する該結晶質母材を、アモルファス化工程とこれに続く結晶化工程から成る連続工程で1回以上処理する。

異方性交換スプリング磁石は、異方性交換スプリング磁石粉末を異方性付与成形工程と固化工程で処理して得られる。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003997]

1. 変更年月日	1990年 8月31日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
氏 名	日産自動車株式会社